

補助事業番号 2019M-115

補助事業名 2019年度 革新的引抜き加工によるマグネシウム合金薄肉細管の創製法開発の研究 補助事業

補助事業者名 古島 剛

1 研究の概要

医療用ステントは、血管内狭窄を改善し十分な血流を得るための医療機器である。しかしながら、一般的な金属材料を用いた場合、狭窄の治癒後に再度、埋め込んだステントを取り除く手術を行う必要があり、患者への負担が大きく近年では、生体内で分解・吸収される生体吸収性材料としてマグネシウム合金のステントが注目されている。しかしながら、生体吸収性ステントに用いられるマグネシウム素形管材は、非常に薄肉かつ細管が求められている一方で、マグネシウム合金は成形性が非常に悪く、その創製は非常に困難であるのが現状である。そこで、これまでの冷間ダイス引抜きと申請者らが提唱する高温ダイレス引抜きを組み合わせ、マグネシウム合金の1回の加工率にして断面減少率70%を実現する非常に高効率な革新的引抜き加工を開発した。本プロセスによって非常に表面性状が良好でかつ寸法精度の高い革新的引抜き法を開発し、従来にない効率的な薄肉・細管化プロセスを実現し外径2mm、肉厚0.2mmのマグネシウム合金薄肉細管の創製に成功した。さらに冷間ダイス引抜きにおける双晶の形成とダイレス引抜きにおける高温域における結晶組織制御による強度・延性バランスの向上と分解速度の制御を実現した。

2 研究の目的と背景

マグネシウムは、比重が鉄の 1/4 程度と最も低く、比強度・非剛性、振動吸収性、リサイクル性に優れる実用金属中で最軽量の金属材料であることが知られている。そのため自動車や鉄道等の輸送機器の軽量化に寄与する革新的な構造材料の一つとして注目を浴びている。一方、最近ではマグネシウムを医療機器材料として使用する取り組みに注目が集まっており、骨固定材やステント等の生体内で留置させる医療機器として使用の可能性が高まっている。特に生体吸収性を有するマグネシウムを生体内で分解・消失させることによって、本来は治癒後に再手術で取り除く必要がある医療機器の代替を図ろうとする試みが注目を浴びている。本研究では医療用・生体吸収性材料へと新たな応用展開が期待されるマグネシウム合金に着目し、その医療機器開発の一例として、生体吸収性ステントに着目する。ステントは血管狭窄が生じた際に、血管内に挿入され、その後、風船のようなバルーンで拡張、留置されることで、狭窄部を治癒する医療機器である。従来、生体適合性に優れたニッケルチタン合金等が用いられてきたが、治癒後にステントを取り除く必要があり、患者に対して負担を生じている。生体吸収性マグネシウム合金がステント用材料として用いることができれば、治癒後に血管内で分解・消失するためステントを取り除く再手

術が不要であり、患者のクオリティライフを向上させることができると考えられる。ステントは、一般的に血管内に挿入可能な外径の微細管をレーザー加工によってメッシュ形状に切断することによって製作するため、マグネシウム合金の薄肉細管化が必要である。しかしながら、マグネシウム合金は、成形性が非常に悪く、微細管の創製は困難とされてきた。

そこで本研究では、マグネシウム合金の薄肉細管化を実現するための効率的なプロセスとして金型を用いないダイレス引抜きと金型を用いるダイス引抜きを組み合わせた革新的なプロセスを提案することを目的とした。

3 研究内容

(1) ダイレス引抜きとダイス引抜きを組み合わせた革新的なプロセス

マグネシウム合金の母管は押し出し加工で製作されるのが一般的である。しかしながら、押し出し比やダイスの剛性の観点から、ステントの母管になり得る薄肉細管を押し出し加工のみで造管するのは非常に困難である。また一般的な金属材料であれば、押し出し後に引抜き加工を施すことで縮管化が可能であるが、室温での成形性の低いマグネシウム合金の場合、多数のダイスを通す引抜き加工と中間焼なましを繰り返す必要があり、非常に生産性が悪い(図1(a))。一回の引抜きで縮管可能な管の横断面積の減少率(断面減少率)は冷間で5%⁴⁾、温間でも15%⁵⁾と非常に悪い。そこで本研究では、著者らが開発した金型を用いずに縮管化するダイレス引抜き法をマグネシウム合金の薄肉細管化に用いる。前述の一般的な引抜き加工に比べ1回の引抜き加工で、非常に大きな断面減少率を達成することが可能である(図1(b))。ダイレス引抜きの原理は、通常の引抜き工程で用いられるダイスの代わりに、図2に示すように素材の一部を急加熱しながら引っ張ることによって、材料径を一様に絞る加工法である。ダイレス引抜き中の断面減少率は、ダイス引抜きのような金型によって決められるのではなく、引抜き速度 V_1 と供給速度 V_0 の比によって決定される。変形前後のチューブの断面積を A_1 、 A_2 とすると断面減少率 R は体積一定則から

$$R = 1 - \frac{A_2}{A_1} = 1 - \frac{V_0}{V_1} \quad (1)$$

で制御でき、金型を使うことなく引抜きが可能でフレキシビリティに富んだ引抜き法である。

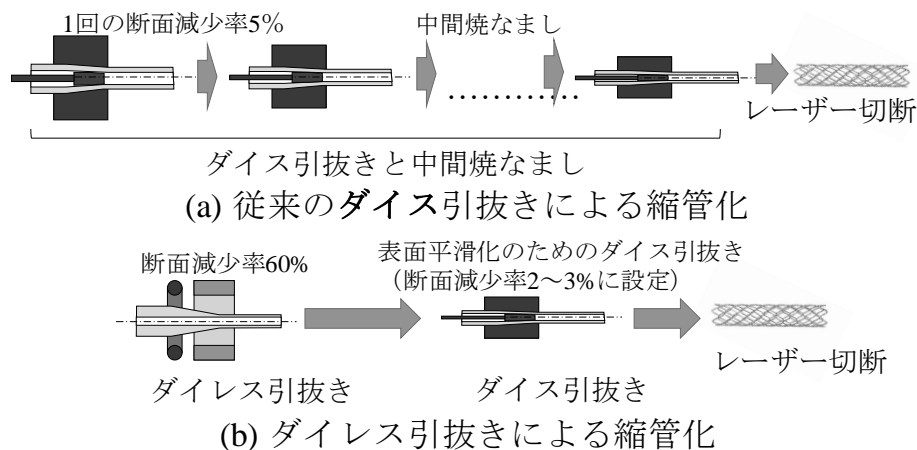


図1 ダイレス引抜きとダイス引抜きの組み合わせによる革新的プロセス

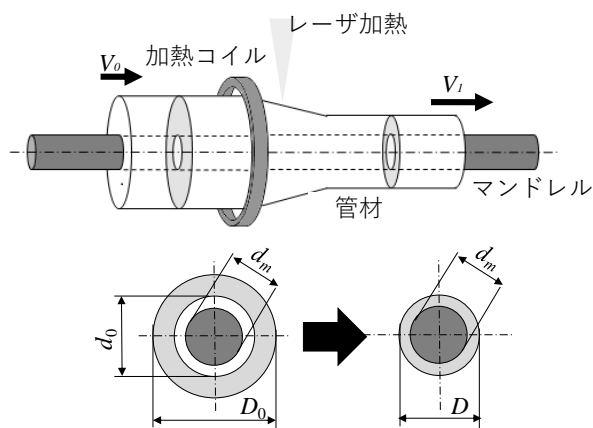


図2 セミダイレス引抜きの概略図

本研究では、さらなる薄肉化を実現するために、ダイレス引抜き中の管内部にマンドレルを挿入することで、内径の減少を抑制するセミダイレス引抜き法も提案することで、積極的な薄肉化を実現することを試みた。初期の管材の外径 D_0 、内径 d_0 とし、マンドレル径を d_m とするとし、引抜き後の内径 d はマンドレル径 d_m に相当するとすると引抜き後の外径 D および肉厚 t は式(2)で表される⁷⁾。

$$D = \sqrt{(D_0^2 - d_0^2) \left(\frac{V_0}{V_1}\right) + d_m^2}, \quad t = \frac{1}{2}(D - d_m) \quad (2)$$

(2) ダイレス引抜きの加工限界

ZM21マグネシウム合金を対象に、供給速度 $V_2=5\text{mm/s}$ の条件下で、様々なマンドレル径 d_m を用いてマンドレルと内径 d_m/d_0 の比が、引抜き可否に及ぼす影響を調査した(図3)。 $d_m/d_0=0.68$

のセミダイレス引抜き条件では、断面減少率は60%を示しており、ダイレス引抜きの場合の限界断面減少率と変わらない。これは $d_m/d_0=0.7$ では、引抜きによって減少する内面とマンドレルが接触せずに、ダイレス引抜きと同様な状態で引抜きが行われているからだと考えられる。 $d_m/d_0=0.79$ のセミダイレス引抜き条件で最も高い限界断面減少率70%を達成することができ、これまでの引抜きでは到底達成できない断面減少率が1パスの加工で実現できている。

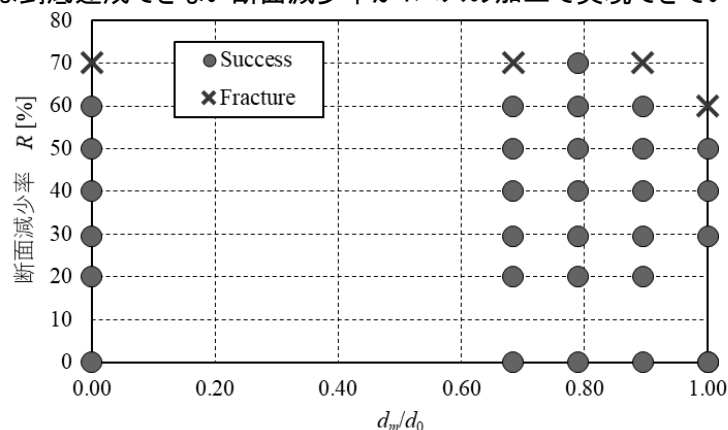


図3 ダイレス引抜きによる大断面減少率の実現

(3) ダイレス引抜きの加工限界

マグネシウム合金微細管の生体吸収性を考慮した場合、その吸収速度、すなわち腐食速度が非常に重要である。腐食速度が速すぎると治癒前に消失することになるため、生体吸収性ステントに対しては、マグネシウム合金の腐食速度は、生体内では早過ぎるといった問題も挙げられているため腐食速度の制御性が求められると考えられる。腐食速度は表面状態や結晶組織にも起因すると言われている。ここではダイレス引抜きによる細管化と同時に行った結晶組織の制御性について調査した。一般的に微細結晶粒であればあるほど耐腐食性が良くなり生体内での吸収速度は遅くなる傾向になると予測されている。図4および図7はZM21マグネシウム合金管のダイレス引抜き前後の結晶組織を示したものである。加熱温度と断面減少率によって結晶粒径が変化していく様子がわかる。加熱温度を適切に選択することで細管化しながら結晶粒を微細化から粗大化させることができることがわかる。すなわち、ダイレス引抜きは、マグネシウム合金微細管の創製と同時に、結晶組織制御による生体内吸収特性の制御も可能になることが期待できる。一般的に生体内でのマグネシウムの吸収速度は個体差があると言われており、本手法で造管された管材は、様々な結晶組織を作り出すことができるため、テーラーメイド医療に対応したステントの創製を可能にするものと考えられる。

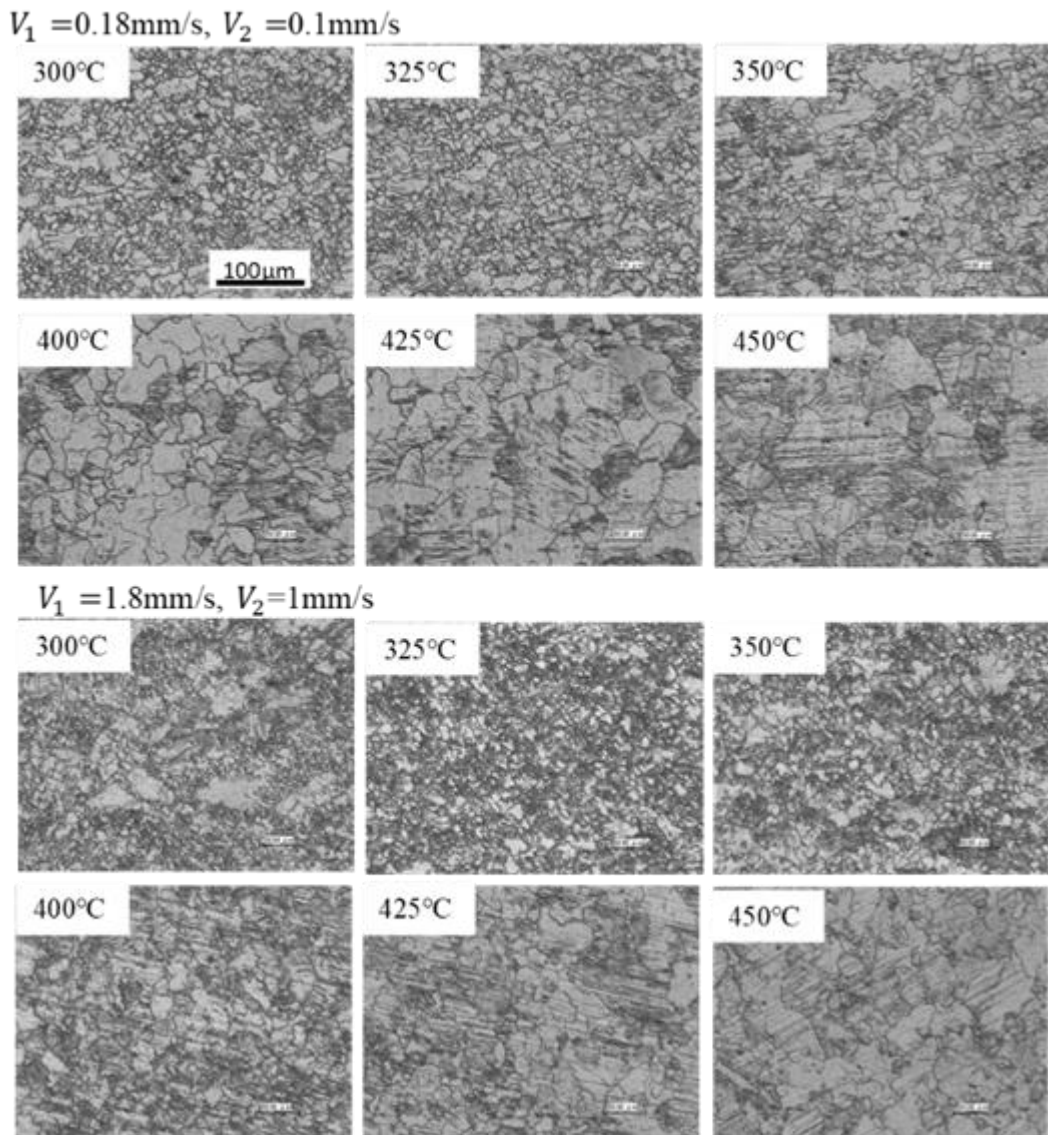


図4 ダイレス引抜き後の結晶組織観察（光学顕微鏡）

(4) 生体吸収性マグネシウム合金ステントの創製

これまでの結果を踏まえ、生体吸収性マグネシウム合金ステントの開発を試みた。本研究では外径2mm、肉厚0.2mmの生体吸収性ステントの創製をターゲットとした。さらなるマグネシウム合金管の薄肉細管化を実現するためにセミダイレス引抜きと冷間ダイス引抜きを複合化させる手法を開発した。ダイレス引抜きの場合、表面は金型と接していないため図5(a)のように自由表面あれによって粗面化する。そこで大断面減少率を生じさせるセミダイレス引抜き後に、数%の断面減少率を与える冷間ダイス引き抜きを行うことで、図5(b)のように表面性状を平滑化することに成功した。この複合引抜き加工を応用し、ダイレス引抜きとその後の2回の冷間ダイス引抜きを1サイクルとした複合引抜き加工を3サイクル繰り返すことによって図6に示すような細管化・薄肉化を実現することができ、最終的に外径2mm、肉厚

0. 2mmの非常に極薄肉の細管を作製することに成功した.

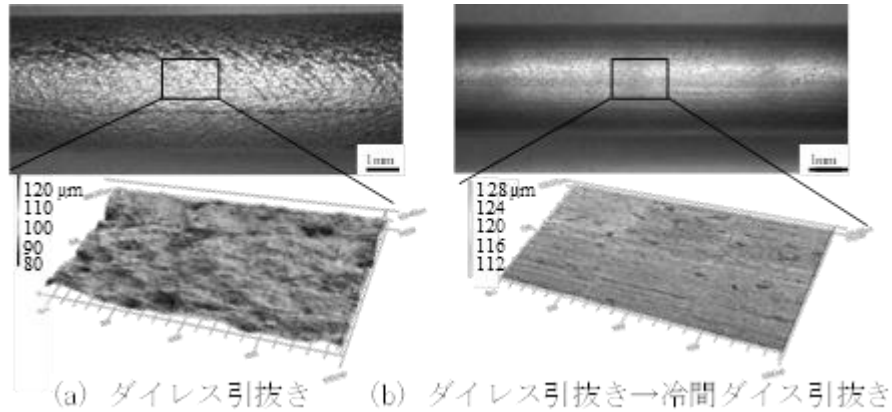


図8 ダイレス引抜き後の表面性状

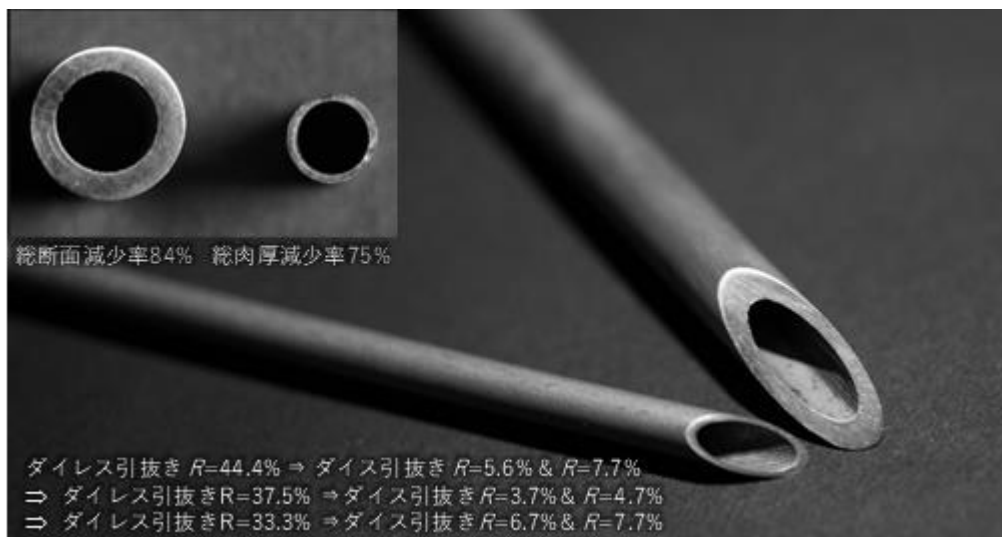


図9 創製したマグネシウム合金薄肉細管

4 本研究が実社会にどう活かされるかー展望

マグネシウム合金は、生体吸収性以外の利点として、実用金属中、最軽量かつ比強度・剛性に優れた金属材料であることが知られている。そのためマグネシウム合金部材は自動車、自転車、航空機、高速鉄道車両などの輸送機器の軽量化にも寄与する素形材の一つである。しかしながら、マグネシウム合金管は、従来の冷間ダイスイ引抜きでは、1回の断面減少率にして5%程度の加工率しか実現できず、マグネシウム合金薄肉細管の創製は非常に困難であったが、本プロセスで提案する冷間ダイスイ引抜きと高温ダイレス引抜きの組み合わせは1回の断面減少率にして70%と、これまでにない大きな断面減少率を実現する革新的引抜き加工プロセスを開発するものであり、マグネシウム合金薄肉細管を創製するにあたって非常に新規性に高い事業であると言える。本事業で開発する冷間ダイスイ引抜きと高温ダイレス引抜きの組み合わせによる革新的引抜き加工

プロセスは、生体吸収性ステント用のマグネシウム薄肉細管を創製のみならず、輸送機器構造部材の軽量化にも貢献できる加工法として、その発展性も高い事業であると言える。

5 教歴・研究歴の流れにおける今回研究の位置づけ

研究者は2006年に首都大学東京の研究員、2007年に同大学助教を経て、2008年に東京都立大学にて博士(工学)の学位を取得すし、2016年10月東京大学生産技術研究所に准教授として着任した。その間、ダイレスフォーミングに関する研究、マイクロ塑性加工への応用に関する研究に従事している。審査付論文48編、国際会議発表62件、国内会議発表64件をこれまでに発表している。また日本塑性加工学会の論文賞を2回、日本機械学会の奨励賞研究1回、国際会議での受賞2回を含む計13件の受賞歴がある。今回の研究は、特にダイレスフォーミングの研究の中で生体吸収性マグネシウム合金の薄肉細管化の実現をテーマにしたものであり、当該分野のこれからの益々の発展が期待できる。

6 本研究にかかわる知財・発表論文等

<査読付論文>

- 1) H. Yasui, T. Miyagawa, S. Yoshihara, T. Furushima, R. Yamada, Y. Ito: Influence of Internal Pressure and Axial Compressive Displacement on the Formability of Small-Diameter ZM21 Magnesium Alloy Tubes in Warm Tube Hydroforming, *Metals*, Vol. 10, No. 5 (2020), 674. (<https://doi.org/10.3390/met10050674>)
- 2) P. Du, S. Furusawa, T. Furushima: Microstructure and performance of biodegradable magnesium alloy tubes fabricated by local-heating-assisted dieless drawing, *Journal of Magnesium and Alloys*, Accepted.

<国際会議論文>

- 1) T. Furushima, P. Du, S. Furusawa: Development of novel drawing process for fabrication of biodegradable ZM21 magnesium alloy tubes, *Proceedings of NUMIFORM 2019: The 13th International Conference on Numerical Methods in Industrial Forming Processes*, (2019), pp. 605-608.

<国内発表>

- 1) 古島 剛, P. Du, 古澤 周作, 吉原 正一郎, 安倍 信貴, 安倍 雅史: セミダイレス引抜きによる生体吸収性マグネシウム合金極細薄肉管材の創製, 2019年度塑性加工春季講演会, (2019) pp. 313-314 (2019年6月7日~9日, 同志社大学京田辺キャンパス)
- 2) P. Du, 古澤 周作, 古島 剛: Microstructure and Performance of Dieless Drawn Biodegradable ZM21 Magnesium Alloy Tubes, 2019年度塑性加工春季講演会, (2019) pp.

333-334 (2019年6月7日～9日, 同志社大学京田辺キャンパス)

7 補助事業に係る成果物

前述した論文が成果物として該当する.

8 事業内容についての問い合わせ先

所属機関名: 東京大学生産技術研究所

(トウキョウダイガク セイサングジュツケンキュウジョ)

住 所: 〒153-8505

東京都目黒区駒場4-6-1

担 当 者: 准教授 古島 剛 (フルシマ ツヨシ)

担 当 部 署: 機械・生体系部門 (キカイ・セイタイケイブモン)

E - m a i l: tsuyoful@iis.u-tokyo.ac.jp

U R L: <https://www.furulab.iis.u-tokyo.ac.jp/>